

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 62-170455

(43)Date of publication of application : 27.07.1987

(51)Int.Cl.

C22C 38/00

H01F 1/04

(21)Application number : 61-012668

(71)Applicant : SUMITOMO SPECIAL METALS  
CO LTD

(22)Date of filing : 23.01.1986

(72)Inventor : TOKUHARA HIROKI  
HIROZAWA SATORU  
MATSUURA YUTAKA  
YAMAMOTO HITOO  
FUJIMURA SETSUO  
SAGAWA MASATO

## (54) PERMANENT MAGNET ALLOY

## (57)Abstract:

PURPOSE: To raise the Curie point of an Fe-B-rare earth element permanent magnet, to improve the temp. characteristics and to increase the residual magnet flux density by incorporating a very small amount of H<sub>2</sub> into the magnet.

CONSTITUTION: The composition of a permanent magnet alloy is composed of, by atom, 10W24% R, 4W24% B, 65W81% Fe and 0.05W0.3% H<sub>2</sub> and the principal phase is made tetragonal phase. In the composition, R is one or more among Pr, Dy, Ho and Tb combined optionally with one or more among La, Ce, Sm, Gd, Er, Eu, Tm, Yb, Lu and Y.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of  
rejection][Kind of final disposal of application other than  
the examiner's decision of rejection or  
application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision  
of rejection][Date of requesting appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2000 Japanese Patent Office

## ⑫ 公開特許公報(A)

昭62-170455

⑤ Int. Cl.<sup>4</sup>C 22 C 38/00  
H 01 F 1/04

識別記号

3 0 4

庁内整理番号

D-7147-4K  
7354-5E

④ 公開 昭和62年(1987)7月27日

審査請求 未請求 発明の数 1 (全4頁)

⑥ 発明の名称 永久磁石合金

⑦ 特 願 昭61-12668

⑧ 出 願 昭61(1986)1月23日

⑨ 発 明 者 徳 原 宏 樹 大阪府三島郡島本町江川2-15-17 住友特殊金属株式会社山崎製作所内

⑩ 発 明 者 広 沢 哲 大阪府三島郡島本町江川2-15-17 住友特殊金属株式会社山崎製作所内

⑪ 発 明 者 松 浦 裕 大阪府三島郡島本町江川2-15-17 住友特殊金属株式会社山崎製作所内

⑫ 発 明 者 山 本 日 登 夫 大阪府三島郡島本町江川2-15-17 住友特殊金属株式会社山崎製作所内

⑬ 出 願 人 住友特殊金属株式会社 大阪市東区北浜5丁目22番地

⑭ 代 理 人 弁理士 押田 良久

最終頁に続く

## 明 細 書

## 1. 発明の名称

永久磁石合金

## 2. 特許請求の範囲

1

R (RはNd, Pr, Dy, Ho, Tbのうち少なくとも1種あるいはさらに、La, Ce, Sm, Gd, Er, Eu, Tm, Yb, Lu, Yのうち少なくとも1種からなる)

10原子%~24原子%、

B 4原子%~24原子%、

Fe 65原子%~81原子%、

H<sub>2</sub> 0.05 原子%~0.3原子%を主成分とし、主相が正方晶相からなることを特徴とする永久磁石合金。

## 3. 発明の詳細な説明

## 利用産業分野

この発明は、Fe-B-R系永久磁石の磁石特性、特に、温度特性を改善し、残留磁束密度のすぐれたFe-B-R系永久磁石合金に関する。

## 背景技術

現在、高磁気特性でかつ安価な永久磁石材料が求められ、さらに資源的に豊富で、今後の安定供給が可能な組成元素からなる永久磁石材料が切望されており、本出願人は先に、高価なSmやCoを含有しない新しい高性能永久磁石としてFe-B-R系(RはYを含む希土類元素のうち少なくとも1種)永久磁石を提案した(特開昭59-46008号、特開昭59-64733号、特開昭59-89401号、特開昭59-132104号)。この永久磁石は、RとしてNdやPrを中心とする資源的に豊富な軽希土類を用い、Feを主成分として20MG0<sub>2</sub>以上の極めて高いエネルギー積を示す、すぐれた永久磁石である。

最近、磁気回路の高性能化、小形化に伴ない、Fe-B-R系永久磁石材料が益々注目され、その用途の多様化に伴って、永久磁石の磁石特性の改善、特に、温度特性の改善が要望されてきた。

前記Fe-B-R三元系永久磁石は、そのキュリー一点が、140℃~400℃で、特にRがNdの場合は312℃であるため、そのBrの温度係数は、-0.15~-0.1%/℃であり、使用条件によって、

磁石特性の低下が甚だしくなり、使用範囲を制限される問題があった。

このFe-B-R系永久磁石において、Feの一部をCoで置換し、キュリー点を上昇させて該温度特性を改善(特開昭59-64733号)することができるが、多量の添加はコスト高を招来する問題がある。

#### 発明の目的

この発明は、希土類・ボロン・鉄を主成分とする本出願人提案の永久磁石材料において、使用用途拡大、使用温度条件の改善のため、磁石特性、特に、温度特性を改善したFe-B-R系永久磁石を目的としている。

#### 発明の構成と効果

発明者らは、Fe-B-R系永久磁石の磁石特性、特に温度特性の改善を計ることができる微量元素の効果について種々検討した結果、Fe-B-R系永久磁石内に、微量のH<sub>2</sub>を含有させることにより、該磁石のキュリー点を上昇させ、温度特性を改善し、かつBrを向上させることができることを

びに、高残留磁束密度、高保磁力を有し、かつ温度による磁気特性の劣化を防止したFe-B-R系永久磁石合金を安価に得ることができる。

#### 永久磁石の成分限定理由

この発明の永久磁石に用いる希土類元素Rは、組成の10原子%~24原子%を占めるが、Nd, Pr, Dy, Ho, Tbのうち少なくとも1種、あるいはさらに、La, Ce, Sm, Gd, Er, Eu, Tm, Yb, Lu, Yのうち少なくとも1種を含むものが好ましい。

また、通常Rのうち1種(好ましくはNd, Pr, Dy, Ho, Tb等)をもって足りるが、実用上は2種以上の混合物(ミッシュメタル、ジジム等)を入手上の便宜等の理由により用いることができる。

また、主相を構成するR中のSm, Laはできるだけ少ないほうが好ましく、例えば、Smは、1原子%以下、さらに好ましくは0.5原子%以下である。

また、温度特性の向上のためには、R混合系として、Nd, Pr、または、これらに0.005原子%~5原子%、好ましくは0.2原子%~3原子%のDy, Ho, Tb等の組み合わせが望ましい。

知見した。

すなわち、この発明は、

R (RはNd, Pr, Dy, Ho, Tbのうち少なくとも1種あるいはさらに、La, Ce, Sm, Gd, Er, Eu, Tm, Yb, Lu, Yのうち少なくとも1種からなる) 10原子%~24原子%、

B 4原子%~24原子%、

Fe 65原子%~81原子%、

H<sub>2</sub> 0.05 原子%~0.3原子%を主成分とし、主相が正方晶相からなることを特徴とする永久磁石合金である。

また、この発明の永久磁石合金は、平均結晶粒径が1~80 $\mu$ mの範囲にある正方晶系の結晶構造を有する化合物を主相とし、体積比で1%~50%の非磁性相(酸化物相を除く)を含むことを特徴とする。

したがって、この発明は、RとしてNdあるいはさらにPrを中心とする資源的に豊富な軽希土類を主に用い、Fe, B, R, H<sub>2</sub>を主成分とすることにより、20MG Oe以上の極めて高いエネルギー積並

さらに、特性、コスト、資源的観点から、Rとしては、Nd, Prが、全Rの50%以上、さらには80%以上であることが好ましい。

なお、このRは純希土類元素でなくてもよく、工業上入手可能な範囲で製造上不可避な不純物を含有するものでも差支えない。

Rは、新規な上記系永久磁石材料における、必須元素であって、10原子%未満では、結晶構造が $\alpha$ -鉄と同一構造の立方晶組織が析出するため、高磁気特性、特に高保磁力が得られず、24原子%を超えると、Rリッチな非磁性相が多くなり、残留磁束密度(B<sub>r</sub>)が低下して、すぐれた特性の永久磁石が得られない。よって、希土類元素は、10原子%~24原子%の範囲とする。

Bは、この発明による永久磁石材料における、必須元素であって、4原子%未満では、菱面体構造が主相となり、高い保磁力(iHc)は得られず、24原子%を超えると、Bリッチな非磁性相が多くなり、残留磁束密度(B<sub>r</sub>)が低下するため、すぐれた永久磁石が得られない。よって、Bは、4原

子%~24原子%の範囲とする。

Fe は、新規な上記系永久磁石において、必須元素であり、65原子%未満では残留磁束密度

(Br)が低下し、81原子%を越えると、高い保磁力が得られないので、Fe は65原子%~81原子%の含有とする。

H<sub>2</sub> は、この発明において、Fe-B-R系永久磁石合金のキュリー点を上昇させて温度特性を改善し、残留磁束密度Brを増加させるため含有させるが、0.05 原子%未満ではキュリー点上昇効果が少なく、0.3原子%を越えると、保磁力

iHc が 5 kOe以下に低下するほか、磁石合金が非常に酸化しやすくなり、実用性がなくなり好ましくないため、0.05 原子%~ 0.3原子%に限定する。

また、この発明による永久磁石合金において、Feの一部をCoで置換することは、得られる磁石の磁気特性を損うことなく、温度特性を改善することができるが、Co置換量がFeの20%を越えると、逆に磁気特性が劣化するため、好ましくない。Co

1.5原子%以下のSn、3.3原子%以下のZr、

6.0原子%以下のNi、5.0原子%以下のSi、

1.1原子%以下のZn、3.3原子%以下のHf、

のうち少なくとも1種を添加含有、但し、2種以上含有する場合は、その最大含有量は当該添加元素のうち最大値を有するものの原子%以下の含有させることにより、永久磁石の高保磁力化が可能になる。なお、添加量の上限は、磁石の(BH)<sub>max</sub>を20MGOe以上とするには、(Br)が少なくとも9 kG以上必要となるため、該条件を満たす範囲とした。

結晶相は主相が正方晶であることが、微細で均一な合金粉末より、すぐれた磁気特性を有する焼結永久磁石を作製するのに不可欠である。

また、この発明の永久磁石は、磁場中プレス成型することにより磁氣的異方性磁石が得られ、また、無磁界中でプレス成型することにより、磁氣的等方性磁石を得ることができる。

この発明による永久磁石は、保磁力iHc ≥ 1kOe、残留磁束密度Br > 4 kG、を示し、最大エネルギー積(BH)<sub>max</sub> は、20MGOe以上を示し、好ましい組

の原子比率がFeとCoの合計量で5%~15%の場合は、(Br)は置換しない場合に比較して増加するため、高磁束密度を得るためには好ましい。

また、この発明による永久磁石は、R、B、Fe、H<sub>2</sub>の他、工業的生産上不可避免的不純物の存在を許容できるが、Bの一部を4.0原子%以下のC、

2.0原子%以下のP、2.0原子%以下のS、2.0原子%以下のCuのうち少なくとも1種、合計量で2.0原子%以下で置換することにより、永久磁石の製造性改善、低価格化が可能である。

また、下記添加元素のうち少なくとも1種は、R-B-Fe系永久磁石に対してその保磁力、減磁曲線の角型性を改善あるいは製造性の改善、低価格化に効果があるため添加することができる。

5.0原子%以下のAl、3.0原子%以下のTi、

5.5原子%以下のV、4.5原子%以下のCr、

5.0原子%以下のMn、5.0原子%以下のBi、

9.0原子%以下のNb、7.0原子%以下のTa、

5.2原子%以下のMo、5.0原子%以下のW、

1.0原子%以下のSb、3.5原子%以下のGe、

成範囲では、最大値は25MGOe以上に達する。

また、この発明永久磁石用合金粉末のRの主成分がその50%以上をNd及びPrを主とする軽希土類金属が占める場合で、R 12原子%~15原子%、B 6原子%~9原子%、Fe 78原子%~80原子%、の組成範囲のとき、(BH)<sub>max</sub> 35MGOe以上のすぐれた磁気特性を示し、特に軽希土類金属がNdの場合には、その最大値が42MGOe以上に達する。

#### 実施例

##### 実施例1

出発原料として、純度99.9%の電解鉄、フェロボロン合金、純度99.7%以上のNdを使用し、これらを配合後高周波溶解し、その後水冷銅鑄型に鑄造し、14Nd 8B 78Feなる組成の鑄塊を得た。

その後このインゴットを、スタンプミルにより粗粉碎し、次にボールミルにより微粉碎し、平均粒度 3.0μmの微粉末を得た。

この微粉末を金型に挿入し、10 kOeの磁界中で配向し、磁界に直交方向に、2 t/cm<sup>2</sup>の圧力で成形した。

得られた成形体を、1100℃、1時間、Ar雰囲気中、の条件で焼結し、さらに、Ar雰囲気中で、800℃、1時間と 630℃、1時間の2段階処理し、その後、処理合金を、0.1TorrのH<sub>2</sub>雰囲気中に、保持時間を種々変えて保持しするH<sub>2</sub>含有処理を施した。

得られた永久磁石のH<sub>2</sub>含有量、キュリー温度及び磁石特性を測定し、その結果を第1表に示す。

第1表より明らかな如く、Fe-B-R系永久磁石内に、微量のH<sub>2</sub>を含有させることにより、該磁石のキュリー点が上昇し、温度特性が改善され、かつBrが向上することが分る。

以下余白

第1表

	含有時間	H <sub>2</sub> 含有量	キュリー温度
発1	5時間	0.08at%	317℃
明2	10時間	0.2 at%	323℃
3	15時間	0.28at%	328℃
比較	—	—	312℃

	Br kG	iHc kOe	(BH) <sub>max</sub> MGOe
	12.6	11.8	34.5
	12.8	10.0	32.0
	13.1	7.2	29.4
	12.3	12.0	34.2

出願人 住友特殊金属株式会社

代理人 押 田 良 久



第1頁の続き

⑦発 明 者 藤 村 節 夫 大阪府三島郡島本町江川2-15-17 住友特殊金属株式会社山崎製作所内

⑧発 明 者 佐 川 真 人 大阪府三島郡島本町江川2-15-17 住友特殊金属株式会社山崎製作所内